

# EUROPEAN PATENT OFFICE

## Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 11329749  
PUBLICATION DATE : 30-11-99

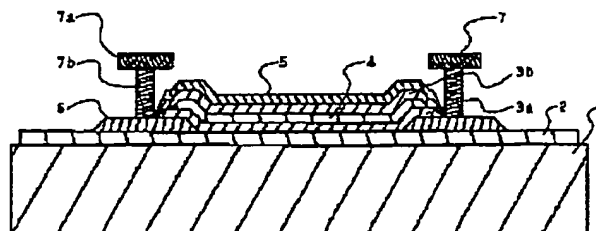
APPLICATION DATE : 12-05-98  
APPLICATION NUMBER : 10146624

APPLICANT : TDK CORP;

INVENTOR : NAKATANI KENJI;

INT.CL. : H05B 33/26 H05B 33/10 H05B 33/12  
H05B 33/14 H05B 33/22

TITLE : ORGANIC EL DISPLAY DEVICE AND  
ITS MANUFACTURE



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To reduce the number of wirings, simplify the production process, and provide high brightness by forming at least a first electrode, two or more kinds of organic layers containing layers each having light emitting function, and a second electrode in order on a substrate, and arranging an intermediate electrode which electrically floats between the organic layers.

SOLUTION: A first electrode 2 is formed, an insulating layer 6 is formed thereon, then an electrode structural body 7 is formed. Organic layers 3a, 3b and an intermediate electrode 4 are formed, and a second electrode 5 is formed. The intermediate electrode 4 is formed in a low step difference covering method, the organic layers 3a, 3b and the second electrode 5 are formed in a high step difference covering method. The organic layers 3a, 3b and the second electrode 5 are formed even in a base part 7a where is the shadow part of the electrode structural body 7, but are not formed in the intermediate layer. Accordingly, the second electrode 5 comes in contact with the base part 7a and is electrically connected to the base part 7a, but the intermediate electrode 4 is not electrically connected to the base part 7a. The base part 7a of the electrode structural body 7 acts as the second electrode 5.

COPYRIGHT: (C)1999,JPO

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-329749

(43) 公開日 平成11年(1999)11月30日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

H 0 5 B 33/26  
33/10  
33/12  
33/14  
33/22

H 0 5 B 33/26 Z  
33/10  
33/12 B  
33/14 A  
33/22 Z

審査請求 未請求 請求項の数17 F D (全 16 頁)

(21) 出願番号 特願平10-146624

(22) 出願日 平成10年(1998) 5 月12日

(71) 出願人 000003067

ティーディーケイ株式会社

東京都中央区日本橋 1 丁目13番 1 号

(72) 発明者 小玉 光文

東京都中央区日本橋一丁目13番 1 号 ティーディーケイ株式会社内

(72) 発明者 中谷 賢司

東京都中央区日本橋一丁目13番 1 号 ティーディーケイ株式会社内

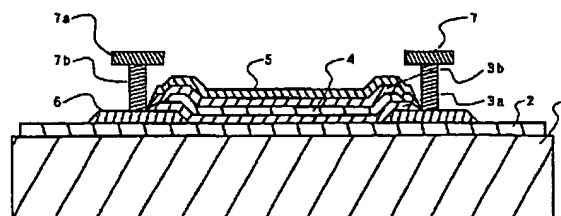
(74) 代理人 弁理士 石井 陽一

(54) 【発明の名称】 有機 E L 表示装置及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 より高い自由度で製造でき、しかも広い発光波長領域を得ることができ、カラーディスプレイ等の複雑な積層構成とする場合でも、配線数が少なく、製造工程が簡単になり、しかも高輝度が得られる有機 E L 表示装置およびその製造方法を実現する。

【解決手段】 基板 1 上に少なくとも第 1 の電極 2 と、それぞれ発光機能を有する層を含有する 2 種以上の有機層 3 a、3 b と、第 2 の電極 5 とを順次有し、前記有機層 3 a、3 b の間には、電気的に浮遊している中間電極 4 を有する構成素子の集合体である有機 E L 表示装置およびその製造方法とした。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に少なくとも第1の電極と、それぞれ発光機能を有する層を含有する2種以上の有機層と、第2の電極とを順次有し、

前記有機層の間には、電気的に浮遊している中間電極を有する構成素子の集合体である有機EL表示装置。

【請求項2】 さらに基板面と平行な方向に突出したオーバーハング部と、導電性を有する基部とを有する電極構造体を有し、

前記構成素子はこの電極構造体の間に形成されていて、この電極構造体の基部と、前記第2の電極とが電気的に接続されている請求項1の有機EL表示装置。

【請求項3】 前記第1の電極と第2の電極とは、マトリクス構造を形成している請求項1または2の有機EL表示装置。

【請求項4】 前記電極構造体は、絶縁層上に形成されている請求項2または3のいずれかの有機EL表示装置。

【請求項5】 前記マトリクス構造は、少なくとも第1の電極から形成されている行または列要素と、第2の電極および電極構造体から形成されている列または行要素で形成されている請求項3または4のいずれかの有機EL表示装置。

【請求項6】 さらに、構成素子を分離する素子分離構造を有する請求項1～5のいずれかの有機EL表示装置。

【請求項7】 前記素子分離構造は、基板面と平行な方向に突出したオーバーハング部と、絶縁性を有する基部とを有する素子分離構造体である請求項6の有機EL表示装置。

【請求項8】 前記素子分離構造は、基板または基板上の絶縁性を有する下地層に形成されている溝構造である請求項6の有機EL表示装置。

【請求項9】 前記素子分離構造は、前記電極構造体の一部に形成されている絶縁膜である請求項6の有機EL表示装置。

【請求項10】 前記有機層は、それぞれ異なった波長の発光機能を有する請求項1～9のいずれかの有機EL表示装置。

【請求項11】 前記中間電極の膜厚は、1～50nmである請求項1～10のいずれかの有機EL表示装置。

【請求項12】 少なくとも基板上に第1の電極を形成し、

絶縁層を形成した後、さらに基板面と平行な方向に突出したオーバーハング部と、導電性を有する基部とを有する電極構造体を形成し、

それぞれ発光機能を有する層を含有する2種以上の有機層と、この有機層と有機層との間には、電気的に浮遊している中間電極を形成し、

次いで第2の電極を順次形成する有機EL表示装置の製

造方法、

【請求項13】 前記第1の電極形成前、または電極構造体を形成した後、素子分離構造を形成する請求項12の有機EL表示装置の製造方法。

【請求項14】 前記中間電極を段差被覆性の低い方法で成膜し、前記有機層、および第2の電極を中間電極よりも段差被覆性の高い方法で成膜する請求項13の有機EL表示装置の製造方法。

【請求項15】 前記素子分離構造は、基板上に絶縁膜を形成した後、素子分離構造体を形成する請求項13または14の有機EL表示装置の製造方法。

【請求項16】 前記素子分離構造は、基板または基板上の絶縁性を有する下地層に溝構造を形成する請求項13または14の有機EL表示装置の製造方法。

【請求項17】 前記素子分離構造は、少なくとも前記電極構造体の一部に絶縁膜を形成する請求項13または14の有機EL表示装置の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は表示デバイス、光源として利用される有機エレクトロ・ルミネッセンス表示装置（以下、有機EL表示装置と略す）の製造方法と構造に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】有機EL素子を用いた表示デバイスは、現在主流のフラットパネルディスプレイである液晶ディスプレイに対し以下のような優位性を持つ。

- 1) 自発光であるために視野角が広い
- 2) 2～3ミリの薄さのディスプレイが容易に製造可能
- 3) 偏光板を使わないことから発光色が自然
- 4) 明暗のダイナミックレンジが広いので、表示が鮮明で生々しい
- 5) 広い温度範囲で動作
- 6) 応答速度が液晶より3桁以上速いため容易に動画表示が可能

【0003】このような優位性に関わらず、なかなか市場へ出回らなかった。これは以下のような理由による。

【0004】一般的に、有機EL素子は、概略すると、「透明導電膜」からなる電極、「発光層を含む有機層」、「仕事関数が小さい金属または合金」からなる電極、の3つの別々の機能を有する薄膜の積層から構成される。これら「発光層を含む有機層」や「仕事関数が小さい金属または合金」が水分や酸素で劣化しやすいこと、「発光層を含む有機層」が溶媒に溶けやすく、また、熱に弱いこと等の製造上の課題があった。言い換えると、水、有機溶媒、熱を用いる方法では「発光層を含む有機層」、「仕事関数が小さい金属または合金」を成膜した後で素子を分離、分割することは困難であったからである。つまり、現在、液晶で実現されているような

ディスプレイと同等なクラスの有機EL表示装置を製造しようとした場合に、成熟した半導体製造技術や液晶ディスプレイ製造技術がそのままでは適用できないということになる。

【0005】このため、例えば、大気中に暴露することなく第2の電極の分離を可能にする技術や、各画素となる素子を配線で接続するための技術が必要となる。

【0006】ところで、有機EL素子を用い、カラーディスプレイを実現するために、種々の方法が検討されている。例えば、発光体自体の発光色を複数用意したり、カラーフィルターを用いて青、緑、赤の3原色を得たりする方法が一般的である。

【0007】発光体自体の発光色を変化させる試みとして、SID 96 DIGEST・185 14.2: Novel Transparent Organic Electroluminescent Devices G. Gu, V. Bulovic, P. E. Burroos, S. Forrest, M. E. Thompsonに記載されたカラー発光素子として、Ag・Mg薄膜を電子注入電極に、ITOをホール注入電極に用いたものが知られている。ここに記載されているカラー発光素子(heterostructure organic light emitting devices)は、図26に示すように、R、G、B各々に対応した発光層(Red EL, Green EL, Blue EL)35、39、43を有する多層構造であり、各発光層35、39、43毎に電子注入電極36、40、44、ホール輸送層33、38、42およびホール注入電極34、37、41が同一積層順に配置され、これらが3原色に対応した積層体として、基板31上に3層に積層されている。

【0008】これらの積層体を駆動するには、図示例のように各電子注入電極36、40、44と、ホール注入電極34、37、41との間に、所定の電源E1、E2、E3を接続しそれぞれの層を発光させる。この場合、各積層体はいずれも順積層であるため、各電源E1、E2、E3も同じ方向に直列に接続された状態となる。

【0009】しかし、このような構造では各積層体毎に一对のホール注入電極と電子注入電極とを用いているため、積層数が多くなる。例えば、単純マトリクス、アクティブマトリクス方式等でのフルカラーディスプレイを考えると、多数の画素に対応した3原色分の配線構造を必要とするのみならず、複雑な駆動方法を開発する必要がある。

【0010】白色発光自体は市場の要望も多く、また、カラーフィルターや蛍光フィルターを用いれば、容易に様々な色を作り出すことができるため、ディスプレイを設計する上で非常に可能性が広がる。

【0011】白色発光させる方法としては、単一の発光層に異なる色を発光する複数の蛍光体をドーピングする方法や、異なる発光色を有する発光層を2層以上積層させる方法が容易に考えられるが、それぞれの蛍光体の相性の問題でうまく複数の発光が得られなかったり、それ

ぞれの発光層にキャリアをうまく供給することができなかったりして、所望の白色発光を得ることが困難であった。

【0012】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、より高い自由度で製造でき、しかも広い発光波長領域を得ることができ、カラーディスプレイ等の複雑な積層構成とする場合でも、配線数が少なく、製造工程が簡単になり、しかも高輝度が得られる有機EL表示装置およびその製造方法を実現することである。

【0013】

【課題を解決するための手段】すなわち、上記目的は以下の構成により達成される。

(1) 基板上に少なくとも第1の電極と、それぞれ発光機能を有する層を含有する2種以上の有機層と、第2の電極とを順次有し、前記有機層の間には、電気的に浮遊している中間電極を有する構成素子の集合体である有機EL表示装置。

(2) さらに基板面と平行な方向に突出したオーバーハング部と、導電性を有する基部とを有する電極構造体を有し、前記構成素子はこの電極構造体の間に形成されていて、この電極構造体の基部と、前記第2の電極とが電気的に接続されている上記(1)の有機EL表示装置。

(3) 前記第1の電極と第2の電極とは、マトリクス構造を形成している上記(1)または(2)の有機EL表示装置。

(4) 前記電極構造体は、絶縁層上に形成されている上記(2)または(3)のいずれかの有機EL表示装置。

(5) 前記マトリクス構造は、少なくとも第1の電極から形成されている行または列要素と、第2の電極および電極構造体から形成されている列または行要素で形成されている上記(3)または(4)のいずれかの有機EL表示装置。

(6) さらに、構成素子を分離する素子分離構造を有する上記(1)～(5)のいずれかの有機EL表示装置。

(7) 前記素子分離構造は、基板面と平行な方向に突出したオーバーハング部と、絶縁性を有する基部とを有する素子分離構造体である上記(6)の有機EL表示装置。

(8) 前記素子分離構造は、基板または基板上の絶縁性を有する下地層に形成されている溝構造である上記(6)の有機EL表示装置。

(9) 前記素子分離構造は、前記電極構造体の一部に形成されている絶縁膜である上記(6)の有機EL表示装置。

(10) 前記有機層は、それぞれ異なる波長の発光機能を有する上記(1)～(9)のいずれかの有機EL

表示装置。

(11) 前記中間電極の膜厚は、1～50nmである上記(1)～(10)のいずれかの有機EL表示装置。

【0014】(12) 少なくとも基板上に第1の電極を形成し、絶縁層を形成した後、さらに基板面と平行な方向に突出したオーバーハング部と、導電性を有する基部とを有する電極構造体を形成し、それぞれ発光機能を有する層を含有する2種以上の有機層と、この有機層と有機層との間には、電気的に浮遊している中間電極を形成し、次いで第2の電極を順次形成する有機EL表示装置の製造方法。

(13) 前記第1の電極形成前、または電極構造体を形成した後、素子分離構造を形成する上記(12)の有機EL表示装置の製造方法。

(14) 前記中間電極を段差被覆性の低い方法で成膜し、前記有機層、および第2の電極を中間電極よりも段差被覆性の高い方法で成膜する上記(13)の有機EL表示装置の製造方法。

(15) 前記素子分離構造は、基板上に絶縁膜を形成した後、素子分離構造体を形成する上記(13)または(14)の有機EL表示装置の製造方法。

(16) 前記素子分離構造は、基板または基板上の絶縁性を有する下地層に溝構造を形成する上記(13)または(14)の有機EL表示装置の製造方法。

(17) 前記素子分離構造は、少なくとも前記電極構造体の一部に絶縁膜を形成する上記(13)または(14)の有機EL表示装置の製造方法。

【0015】

【発明の実施の形態】本発明の有機EL表示装置は、例えば図1に示すように、基板1上に少なくとも第1の電極2と、それぞれ発光機能を有する層を含有する2種以上の有機層3a、3bと、第2の電極5とを順次有し、前記有機層3aと有機層3bとの間には、電気的に浮遊している中間電極4を有する構成素子の集合体である。

【0016】このように、電気的に浮遊している中間電極4を、有機層と有機層との間に設けることにより、中間電極分の配線構造が不要となり、構造が簡単になり、製造工程が減り、コストの低減を図ることができる。

【0017】例えば図2に示すように、構成素子である積層体は、各有機層を1つの単位とするダイオードと見なすことができる。従って、各発光単位として、複数の有機層が積層された構成素子は、ダイオードD1～D3が直列に接続された状態となる。また、それぞれの発光単位D1～D3に対応した電源(駆動電圧)E1～E3を必要とし、これにより発光に必要な電圧と電流の供給を受けて各発光単位が発光する。

【0018】この場合、通常図2に示すように、ノードN1とノードN3、およびノードN2とノードN4とは図のように接続されていて、それぞれの発光単位D1～D3がそれぞれ独立に、あるいは共通に駆動されるわけ

であるが、その分与分に配線構造を必要とし、積層構造、あるいは2次元または3次元の配線構造が極めて複雑となり、極めて困難な製造工程を必要とする。そこで、図3に示すように、ノードN1とノードN3、およびノードN2とノードN4との接続を行わず、その部分を浮遊状態とすることで、配線構造が不要となり、膜構成、製造工程を単純化することができる。ただし、この場合の電源はそれぞれの発光単位D1～D3に対応した電源(駆動電圧)E1～E3の総和となる。

【0019】中間電極であるノードN1とノードN2は、浮遊状態となっているが、上下の有機層間の導通を確保している。このため、直列に接続された発光単位D1～D3には、電源E1～E3が印加され、電流が流れ発光する。そして、各発光単位D1～D3に赤、緑、青色の発光を行わせることで白色発光が得られる。この場合、各発光単位の発光輝度を調整することにより、発光色を調整してもよい。また得られた白色発光は、カラーフィルターを用いることにより、極めて容易にフルカラー表示装置とすることができる。なお、上記例では発光層(有機層)を3層としたが、発光層を2層とし、それぞれの発光層の発光色を調整することにより白色発光を得ることも可能である。

【0020】また、中間電極を浮遊状態とするため、例えば、図1に示すような電極構造体7を形成することが好ましい。この電極構造体7は、少なくとも導電性を有する基部7bと、基板面とほぼ平行な方向に突出したオーバーハング部7aとを有し、このオーバーハング部7aにより得られる陰の部分により、中間電極を浮遊状態としたり、第2の電極への配線を効率よく行うことができる。

【0021】すなわち、第1の電極を形成し、さらにその上に絶縁層6を形成した後、電極構造体7を形成する。そして、有機層および中間電極を形成し、第2の電極を形成する。このとき、中間電極を段差被覆性の低い方法で成膜し、有機層および第2の電極を段差被覆性の高い方法で成膜すると、有機層および第2の電極は、電極構造7の陰の部分である基部7aの部分にも成膜されるが、中間層は成膜されない。従って、第2の電極は、基部7aと接触し、電気的に導通されるが、中間電極は導通されないこととなる。そして、この電極構造体の基部7aを第2の電極の配線電極とすれば、第2の電極の配線構造と、中間電極の浮遊した電気的構造を実現できることになる。

【0022】なお、通常、第1の電極と、第2の電極とはお互いに立体的に交差するマトリクス構造を形成し、それぞれ、行、または列の構成要素となる電極線として機能する。従って、電極構造7も線状に形成されるわけであるが、1つの構成素子を間に挟む電極構造と、その隣の電極構造とは、電気的に分離する必要がある。このため、1つの構成素子を間に挟む電極構造と、その隣の

電極構造との間に素子分離構造を形成することが好ましい。

【0023】素子分離構造は、例えば本発明者らが先に出願した特願平8-147313号に記載されているようなオーバーハング部を有する絶縁体であってもよい、平成10年4月15日付提出の特許願(整理番号10F123)に記載されているような溝構造であってもよい。また、前記電極構造の一部(構成素子を間に挟む側以外の部位)に、絶縁膜を形成したのも等でもよい。

【0024】電極構造の基部の材質としては、導電性を有し、好ましくは高導電率のもので、酸化等腐食にくいものであれば特に限定されるものではないが、金属材料としては、例えば、電極層ではAl等の容易に膜厚を厚くすることが可能で応力が小さい金属薄膜等が挙げられる。具体的には、Al、Alおよび遷移金属、特にSc、Nb、Zr、Hf、Nd、Ta、Cu、Si、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、W等を、好ましくはこれらの総計が10at%以下、特に5at%以下、特に2at%以下含有していてもよいアルミニウム基合金等を好ましく挙げることができる。アルミニウムは低抵抗であり、配線電極として機能する基部に用いた場合良好な効果が得られる。また、この他、カーボンやカーボンと樹脂との混合物等を用いてもよい。また、必要により、Al、Al基合金等の安価で低抵抗な金属材料と、Crや、TiN等の安定な導電体とを積層した構造としてもよい。

【0025】電極構造のオーバーハング部の材質としては、上記基部と同一であっても異なってもよいが、オーバーハング構造を形成するためには、選択的なエッチングが容易なように異なっていることが好ましい。基部と異なった材料を用いる場合、導電体であっても絶縁体であってもよく、窒化チタン、窒化モリブデン、窒化タンタル、窒化クロム等の窒化物；コバルトシリサイド、クロムシリサイド、モリブデンシリサイド、タングステンシリサイド、チタンシリサイド等のシリサイド化合物；チタンカーバイド、ドーブト炭化シリコン、クロム等の金属または金属化合物や、レジスト、ポリイミド、アクリル系樹脂、オレフィン系樹脂等の樹脂材料や、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{SiN}_2$ 、 $\text{SiON}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、SOG (spin on glass) 膜等の無機材料を好ましく挙げることができる。

【0026】電極構造の大きさとしては、設計する素子の構造や、構成膜の数などにより適宜最適な大きさに調整すればよいが、通常、基部で、幅1~50 $\mu\text{m}$ 、高さ300nm~5 $\mu\text{m}$ 程度、オーバーハング部で、幅2~100 $\mu\text{m}$ 、高さ100nm~10 $\mu\text{m}$ 程度である。また、基部の高さ：有機層および第2の電極層の合計膜厚の1/2~20倍、特に2倍~10倍程度、オーバーハング部のオーバーハングの割合は、基部の高さの1/5~20倍程度が好ましい。

【0027】電極構造を形成するには、第1の電極形成後、その上に絶縁層を形成し、パターンニングした後、さらにその上に気相堆積法、塗布、スピンコート法等により、基部の層とオーバーハングの層とを成膜する。これを、フォトリソグラフィ等の手法によりオーバーハング部をパターンニングした後、さらに、基部をエッチングし、このときに基部の部分のみをオーバーエッチングさせるようにすればよい。

【0028】電極構造は絶縁層上に形成される。この絶縁層は、 $\text{SiO}_2$ 等の酸化ケイ素、窒化ケイ素、 $\text{FeO}$ 等の無機系材料をスパッタや真空蒸着で成膜したもの、SOG (スピン・オン・ガラス) で形成した酸化ケイ素層、フォトレジスト、ポリイミド、アクリル樹脂などの樹脂系材料の塗膜など、絶縁性を有するものであればよい。ただし、絶縁層の下側には第1の電極であるITO等のホール注入電極(いわゆる逆積層では電子注入電極)が存在するので、絶縁層形状にパターンニングする際に電極へダメージを与えないようなパターンニングが可能な材料を用いることが好ましい。このような好ましい絶縁層材として、例えばポリイミドが挙げられる。

【0029】絶縁層の膜厚は、50~750nm程度が好ましい。絶縁層の膜厚が薄すぎると本発明の効果が得難くなる。また、厚すぎると有機層、電子注入電極および補助電極等に段切れ(段部、特に絶縁層縁部から発光部の中央部分に向かう部分等での成膜時ないし成膜後に生じる膜の不連続部分)が生じる場合がある。絶縁層の形成領域は、通常、ホール注入電極の周囲に形成される。

【0030】絶縁層をスパッタ法で成膜する場合、特に限定されるものではないが、RFスパッタやDCスパッタが好ましい。その投入電力としては、DCスパッタ装置では、好ましくは0.1~10W/cm<sup>2</sup>、特に0.5~7W/cm<sup>2</sup>の範囲である。また、成膜レートは5~100nm/min、特に10~50nm/minの範囲が好ましい。また、RFスパッタでは、RF帯域の高周波を供給しうる電源を有するものであれば特に限定されるものではないが、通常、周波数：13.56MHz、投入電力：100~500W程度である。

【0031】スパッタガスとしては特に限定するものではなく、Ar、He、Ne、Kr、Xe等の不活性ガス、あるいはこれらの混合ガスを用いればよい。スパッタガス圧力は、RFスパッタで好ましくは0.3~3.0Pa、より好ましくは0.5~1.0Pa程度である。また、DCスパッタで、0.1~20Pa程度である。

【0032】フォトレジスト、ポリイミド、アクリル樹脂などの樹脂系材料を用いる場合、通常塗布、スピンコート、ディッピング等により設けることができる。

【0033】絶縁層を所定のパターンに形成するリソグラフィ工程は、通常、上記のような無機系材料が成膜された基板や、有機高分子の溶液が塗布等された基板にレ

ジスト塗布し、このレジスト膜に電子線、紫外線、X線等を照射して露光した後、適当なアルカリ液で現像を行う。次いで、層間絶縁層のエッチングを施し、その後レジストを除去する。レジスト膜の膜厚としては、通常1～2μm程度である。

【0034】すなわち、上記のレジスト膜を所定のパターンに露光する。露光に用いられるのは、電子線、紫外線、X線等が挙げられ、照射は通常の方法に従えばよい。また描画は用いる電子線、紫外線等に応じて、マスクを用いるなど、適宜所定の方法を選択すればよい。その後、アルカリ液を用いて現像する。

【0035】現像後、基板に残ったレジスト膜を保護膜として、基板をエッチングする。エッチングは、化学エッチング液を用いる湿式エッチングでもプラズマや加速イオンを用いるドライエッチングでもよい。湿式エッチングに用いる化学エッチング液は基板の材質に応じて適宜選択すればよく、 $H_2O:HF:CH_3COOH=5:1:10$ 等の他、 $HF$ 液、 $NH_4F$ 、 $HF-H_2O$ 混合液等が挙げられる。

【0036】また、ドライエッチングとして汎用されているプラズマエッチングに用いるプラズマガスは、被着体の材質に応じて適宜選択すればよく、 $SF_6$ 、 $CHBr_3$ 、 $CF_4$ 等が挙げられる。

【0037】エッチングの具体的方法、条件等については、常法に従えばよい。そして、エッチング終了後、レジスト膜が除去される。

【0038】素子分離構造体の基部の形成に用いられる材料としては、ポリイミド樹脂、アクリル樹脂等の有機樹脂膜、 $SiO_2$ 、 $SiN_x$ 、 $a-Si$ 、SOG (Spin on Glass) 等の無機絶縁膜等が挙げられ、好ましくは、ポリイミド樹脂、 $SiO_2$ 、SOG等である。オーバーハング部の形成に用いられる材料としては、感光性を有するものが好ましく、例えばフォトレジスト、感光性ポリイミド、あるいは、 $SiO_2$ 、 $SiN_x$ 、 $Al_2O_3$ 、 $CrO_3$ 、 $a-Si$ 、 $SiC$ 等の堅い絶縁膜や半導体膜、あるいは $Cr$ 、 $Ta$ 、 $Mo$ 、 $Ni$ 、 $W$ 、 $Ti$ 、 $TiN$ 、 $ZnO$ 、 $ITO$ 等の導電性薄膜が使用可能であり、さらに絶縁膜や半導体膜の上に感光性の膜が積層されたもの等が挙げられ、好ましくは、フォトレジスト、 $SiO_2$ 、 $Cr$ 、 $Ti$ 等である。

【0039】基部の大きさとしては、特に限定されるものではないが、通常幅1μm以上であれば十分に基部としての機能は果たすが、特に2μm以上が好ましく、高さ(膜厚)は0.2μm以上、特に0.5～1.0μm程度が好ましい。また、オーバーハング部の大きさとしては、特に限定されるものではないが、通常基部の膜厚の1/2と同程度以上のオーバーハング長を有するような構造とすることが好ましい。高さ(膜厚)は0.1～1.0μm、特に0.2～5μm程度が好ましい。これらを合わせた高さは、1～2.0μm、特に0.7～1.0μm

程度が好ましい。

【0040】素子分離構造体を形成するには、まず、ホール注入電極、絶縁層等が形成された基板上に、上記基部の材料よりなる基部層を、好ましくは樹脂膜やSOG膜はスピンコート法やロールコート法で、絶縁膜や半導体膜はスパッタ法やCVD法で、金属化合物の膜は蒸着法等により形成し、さらに、上記同様に、基部層上に感光性を有するオーバーハング部層を形成する。このオーバーハング部層を露光、現像してパターンニングすると同時に、またはその後に、前記基部層をエッチングし、かつこの基部層がオーバーハング部層より小さくなるようにオーバーエッチングさせてオーバーハング体とすればよい。基部の形成にスパッタ法を用いる場合、その条件等は上記層間絶縁層と同様である。また、基部やオーバーハング部を樹脂等で形成する際の形成方法は、上記フォトレジストの手法等に準じればよい。

【0041】素子分離構造が溝構造である場合、基板に直接形成してもよいし、基板上に所定の膜厚の下地層を形成して、この下地層に形成してもよい。溝構造の大きさは、素子の分離が可能な大きさであれば特に限定されるものではなく、表示装置の大きさ、あるいは分離しようとする有機EL素子の大きさや、成膜する各層の膜厚、成膜方法等により適宜決めればよい。具体的には、通常、幅:1～2.0μm、特に5～1.0μm程度、深さ:有機層および第2の電極層の合計膜厚の1/2～2.0倍、特に2倍～1.0倍程度である。

【0042】この下地層としては、絶縁性を有し、エッチング処理が可能で、その上に成膜される第1の電極層と干渉しないような材料を用いて形成することが好ましい。溝構造を形成する下地層は感光性を有する絶縁性材料を用いて形成しても良い。具体的には、ポリイミド、アクリル系樹脂、オレフィン系樹脂等の樹脂材料や、 $SiO_2$ 、 $SiN_x$ 、 $SiON$ 、 $Al_2O_3$ 、SOG (spin on glass) 膜等の無機材料を挙げることができる。下地層は、蒸着、スパッタ、塗布、印刷、スピンコートなど、使用する材料により公知の成膜手段から好適なものを選択して形成すればよい。

【0043】溝構造は、単なるU字状の凹部として形成してもよいし、開口部付近に向けて広がった形状としてもよいし、逆に底部に向かって広がった形状としてもよい。このようなテーパ角としては、特に限定されるものではないが、開口方向(基板と垂直方向)に対して、好ましくは±30～60度、特に±45度程度である。また、開口部付近に基板と概ね平行な方向であって、溝構造の中央方向に張り出したオーバーハングや、底部から基板面と垂直な方向(上方)に向かって突出した構造物を有していてもよい。

【0044】さらに、素子分離構造は、前記電極構造の一部(構成素子を間に挟む側以外の部位)に、絶縁膜を形成したのもでもよい。この場合、電極構造形成後、フ

ォトレジスト材料を成膜し、レジスト材が所望の部位に残存するよう上方および斜め方向から露光して所定の部位にレジスト材の絶縁膜を形成するとよい。あるいは、ポリイミド、アクリル系樹脂、オレフィン系樹脂等の樹脂材料や、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{SiN}_2$ 、 $\text{SiON}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SOG}$  (spin on glass) 膜等の無機材料からなる絶縁膜を形成後、さらにフォトレジストを塗布し、素子分離構造が必要な部位にのみ絶縁膜が残存するように露光・現像すればよい。

【0045】中間電極としては、通常、発光光を透過させる必要があることから、透明ないし半透明な電極が好ましい。透明電極としては、ITO (鉛ドーパ酸化インジウム)、IZO (亜鉛ドーパ酸化インジウム)、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{In}_2\text{O}_3$  等が挙げられるが、好ましくはITO (鉛ドーパ酸化インジウム)、IZO (亜鉛ドーパ酸化インジウム) が好ましい。ITOは、通常InとSnとを化学量論組成で含有するが、O量は多少これから偏倚していてもよい。 $\text{In}_2\text{O}_3$  に対する $\text{SnO}_2$  の混合比は、1~20wt%、さらには5~12wt%が好ましい。また、IZOでの $\text{In}_2\text{O}_3$  に対する $\text{ZnO}$  の混合比は、通常、12~32wt%程度である。

【0046】中間電極は、発光波長帯域、通常350~800nm、特に各発光光に対する光透過率が60%以上、好ましくは80%以上、特に90%以上であることが好ましい。通常、発光光は中間電極を通して取り出されるため、その透過率が低くなると、発光層からの発光自体が減衰され、発光素子として必要な輝度が得られなくなる傾向がある。

【0047】中間電極は、上記光透過率を確保しうるものであれば下記の金属系材料を用いることもできる。この場合には、仕事関数の小さい物質が好ましく、例えば、K、Li、Na、Mg、La、Ce、Ca、Sr、Ba、Al、Ag、In、Sn、Zn、Zr等の金属元素単体、または安定性を向上させるためにそれらを含む2成分、3成分の合金系を用いることが好ましい。合金系としては、例えばAg-Mg (Ag: 0.1~50at%)、Al-Li (Li: 0.01~14at%)、In-Mg (Mg: 50~80at%)、Al-Ca (Ca: 0.01~20at%) 等が好ましい。また、特にこれらの酸化物を用いることが好ましい。中間電極を酸化物とすることにより、ITO等の酸化物を第1の電極に用いると、対になった酸化物で有機層を囲むようになり、耐候性が向上する。

【0048】中間電極の厚さは、有機層同士を分離し、電子およびホール注入・輸送を確保できる一定以上の厚さを有すれば良く、好ましくは1~50nm、さらには5~20nmの範囲が好ましい。また、その上限は特に制限はないが、あまり厚いと、光透過率が低下したり、剥離などの心配が生じる。厚さが薄すぎると、膜強度の点

で問題がある。

【0049】この中間電極は蒸着法等によっても、スパッタ法によっても形成することができる。

【0050】なお、中間電極に接する有機層には、後述の有機物や、好ましくはこれに替え、あるいはこれに加えて電子注入性、またはホール輸送性材料であって、これらの電極材料と相性のよい物質を適宜選択して用いることが好ましい。このような有機物質として、例えば、ポリチオフェンや、銅フタロシアニン等を挙げることができる。

【0051】第1の電極は、通常ホール注入電極として機能する。この第1の電極は、通常、基板側から発光した光を取り出す構成であるため、上記中間電極と同様に、透明ないし半透明な電極が好ましい。透明電極としては、上記中間電極同様にITO、IZO、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{In}_2\text{O}_3$  等が挙げられ、好ましくはITO、IZOである。

【0052】ホール注入電極の厚さは、ホール注入電極である場合、ホール注入を十分行える一定以上の厚さを有すれば良く、好ましくは10~500nm、さらには30~300nmの範囲が好ましい。また、その上限は特に制限はないが、あまり厚いと剥離、加工性の悪化、応力による障害、光透過性の低下や、表面の粗さによるリーク等の問題が生じてくる。逆に厚さが薄すぎると、製造時の膜強度やホール輸送能力、抵抗値の点で問題がある。

【0053】第1の電極は、蒸着法等によっても、スパッタ法によっても形成することができ、特にITO等の場合にはスパッタ法 (パルスDCスパッタ) が好ましい。

【0054】第2の電極は、通常、電子注入電極として機能する。電子注入電極としては、低仕事関数の物質が好ましく、上記中間電極で例示したもの等が挙げられる。なお、電子注入電極は蒸着法やスパッタ法で形成することが可能である。

【0055】電子注入電極薄膜の厚さは、電子注入を十分行える一定以上の厚さとすれば良く、0.1nm以上、好ましくは0.5nm以上、特に1nm以上とすればよい。また、その上限値には特に制限はないが、通常膜厚は1~500nm程度とすればよい。電子注入電極には、さらに補助電極を設けてもよい。

【0056】補助電極の厚さは、電子注入効率を確保し、水分や酸素あるいは有機溶媒の進入を防止するため、一定以上の厚さとすればよく、好ましくは50nm以上、さらには100nm以上、特に100~1000nmの範囲が好ましい。補助電極層が薄すぎると、その効果が得られず、また、補助電極層の段差被覆性が低くなってしまい、端子電極との接続が十分ではなくなる。一方、補助電極層が厚すぎると、補助電極層の応力が大きくなるため、ダークスポットの成長速度が速くなってしま



う。

【0057】電子注入電極と保護電極とを併せた全体の厚さとしては、特に制限はないが、通常100～1000nm程度とすればよい。

【0058】なお、第1の電極が電子注入電極であって、第2の電極がホール注入電極である、いわゆる逆積層構造としてもよい。

【0059】電極成膜後に、前記保護電極に加えて、SiO<sub>2</sub>等の無機材料、テフロン、塩素を含むフッ化炭素重合体等の有機材料等を用いた保護膜を形成してもよい。保護膜は透明でも不透明であってもよく、保護膜の厚さは50～1200nm程度とする。保護膜は、前記の反応性スパッタ法の他に、一般的なスパッタ法、蒸着法、PECVD法等により形成すればよい。

【0060】次に、構成素子の各発光単位となる有機層について説明する。

【0061】発光層は、ホール（ホール）および電子の注入機能、それらの輸送機能、ホールと電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する。発光層には、比較的電子的にニュートラルな化合物を用いることで、電子とホールを容易、かつバランスよく注入輸送することができる。

【0062】ホール注入輸送層は、ホール注入電極からのホールの注入を容易にする機能、ホールを安定に輸送する機能および電子を妨げる機能を有するものであり、電子注入輸送層は、陰電極からの電子の注入を容易にする機能、電子を安定に輸送する機能およびホールを妨げる機能を有するものである。これらの層は、発光層に注入されるホールや電子を増大・閉じこめさせ、再結合領域を最適化させ、発光効率を改善する。

【0063】発光層の厚さ、ホール注入輸送層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは、特に制限されるものではなく、形成方法によっても異なるが、通常5～500nm程度、特に10～300nmとすることが好ましい。

【0064】ホール注入輸送層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは、再結合・発光領域の設計によるが、発光層の厚さと同程度または1/10～10倍程度とすればよい。ホールまたは電子の各々の注入層と輸送層とを分ける場合は、注入層は1nm以上、輸送層は1nm以上とするのが好ましい。このときの注入層、輸送層の厚さの上限は、通常、注入層で500nm程度、輸送層で500nm程度である。このような膜厚については、注入輸送層を2層設けるときも同じである。

【0065】有機EL素子の発光層には、発光機能を有する化合物である蛍光性物質を含有させる。このような蛍光性物質としては、例えば、特開昭63-264692号公報に開示されているような化合物、例えばキナクリドン、ルブレン、スチリル系色素等の化合物から選択される少なくとも1種が挙げられる。また、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム等の8-キノリノールま

たはその誘導体を配位子とする金属錯体色素などのキノリン誘導体、テトラフェニルブタジエン、アントラセン、ペリレン、コロネン、12-フタロペリノン誘導体等が挙げられる。さらには、特願平6-110569号のフェニルアントラセン誘導体、特願平6-114456号のテトラアリアルエテン誘導体等を用いることができる。

【0066】また、それ自体で発光が可能なホスト物質と組み合わせて使用することが好ましく、ドーパントとしての使用が好ましい。このような場合の発光層における化合物の含有量は0.01～10wt%、さらには0.1～5wt%であることが好ましい。ホスト物質と組み合わせて使用することによって、ホスト物質の発光波長特性を変化させることができ、長波長に移行した発光が可能になるとともに、素子の発光効率や安定性が向上する。

【0067】ホスト物質としては、キノリノラト錯体が好ましく、さらには8-キノリノールまたはその誘導体を配位子とするアルミニウム錯体が好ましい。このようなアルミニウム錯体としては、特開昭63-264692号、特開平3-255190号、特開平5-70733号、特開平5-258859号、特開平6-215874号等に開示されているものを挙げるができる。

【0068】具体的には、まず、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム、ビス（8-キノリノラト）マグネシウム、ビス（ベンゾ[f]-8-キノリノラト）亜鉛、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）アルミニウムオキシド、トリス（8-キノリノラト）インジウム、トリス（5-メチル-8-キノリノラト）アルミニウム、8-キノリノラトリチウム、トリス（5-クロロ-8-キノリノラト）ガリウム、ビス（5-クロロ-8-キノリノラト）カルシウム、5,7-ジクロロ-8-キノリノラトアルミニウム、トリス（5,7-ジブromo-8-ヒドロキシキノリノラト）アルミニウム、ポリ〔亜鉛(II)-ビス（8-ヒドロキシ-5-キノリニル）メタン〕等がある。

【0069】また、8-キノリノールまたはその誘導体のほかに他の配位子を有するアルミニウム錯体であってもよく、このようなものとしては、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（フェノラト）アルミニウム(III)、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（オルト-クレゾラト）アルミニウム(III)、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（メタ-クレゾラト）アルミニウム(III)、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（パラ-クレゾラト）アルミニウム(III)、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（オルト-フェニルフェノラト）アルミニウム(III)、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（メタ-フェニルフェノラト）アルミニウム(III)、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）（パラ-フェニルフェノラト）アルミニウム(III)、ビス（2-

メチル-8-キノリノラト) (2, 3-ジメチルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) (2, 6-ジメチルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) (3, 4-ジメチルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) (3, 5-ジメチルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) (3, 5-ジ tert-ブチルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) (2, 6-ジフェニルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) (2, 4, 6-トリフェニルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) (2, 3, 6-トリメチルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) (2, 3, 5, 6-テトラメチルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) (1-ナフトラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) (2-ナフトラト) アルミニウム(III)、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラト) (オルト-フェニルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラト) (パラ-フェニルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラト) (メタ-フェニルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラト) (3, 5-ジメチルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラト) (3, 5-ジ tert-ブチルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラト) (パラ-クレゾラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラト) (パラ-フェニルフェノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラト) (オルト-クレゾラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-6-トリフルオロメチル-8-キノリノラト) (2-ナフトラト) アルミニウム(III) 等がある。

【0070】このほか、ビス(2-メチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III) - $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III)、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III) - $\mu$ -オキソ-ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III)、ビス(4-エチル-2-メチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III) - $\mu$ -オキソ-ビス(4-エチル-2-メチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-4-メトキシキノリノラト) アルミニウム(III) - $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-4-メトキシキノリノラト) アルミニウム(III)、ビス(5-シアノ-2-メチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III) - $\mu$ -オキソ-

ビス(5-シアノ-2-メチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III) - $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III) 等であってもよい。

【0071】このほかのホスト物質としては、特願平6-110569号に記載のフェニルアントラセン誘導体や特願平6-114456号に記載のテトラアリールエテン誘導体なども好ましい。

【0072】発光層は電子注入輸送層を兼ねたものであってもよく、このような場合はトリス(8-キノリノラト) アルミニウム等を使用することが好ましい。これらの蛍光性物質を蒸着すればよい。

【0073】また、発光層は、必要に応じて、少なくとも1種のホール注入輸送性化合物と少なくとも1種の電子注入輸送性化合物との混合層とすることも好ましく、さらにはこの混合層中にドーパントを含有させることが好ましい。このような混合層における化合物の含有量は、0.01~20wt%、さらには0.1~15wt%とすることが好ましい。

【0074】混合層では、キャリアのホッピング伝導パスができるため、各キャリアは極性的に有利な物質中を移動し、逆の極性のキャリア注入は起こりにくくなるため、有機化合物がダメージを受けにくくなり、素子寿命がのびるという利点がある。また、前述のドーパントをこのような混合層に含有させることにより、混合層自体のもつ発光波長特性を変化させることができ、発光波長を長波長に移行させることができるとともに、発光強度を高め、素子の安定性を向上させることもできる。

【0075】混合層に用いられるホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物は、各々、後述のホール注入輸送層用の化合物および電子注入輸送層用の化合物の中から選択すればよい。なかでも、ホール注入輸送層用の化合物としては、強い蛍光を持ったアミン誘導体、例えばホール輸送材料であるトリフェニルジアミン誘導体、さらにはスチリルアミン誘導体、芳香族縮合環を持つアミン誘導体を用いるのが好ましい。

【0076】電子注入輸送性の化合物としては、キノリン誘導体、さらには8-キノリノールないしその誘導体を配位子とする金属錯体、特にトリス(8-キノリノラト) アルミニウム( $Alq_3$ )を用いることが好ましい。また、上記のフェニルアントラセン誘導体、テトラアリールエテン誘導体を用いるのも好ましい。

【0077】ホール注入輸送層用の化合物としては、強い蛍光を持ったアミン誘導体、例えば上記のホール輸送材料であるトリフェニルジアミン誘導体、さらにはスチリルアミン誘導体、芳香族縮合環を持つアミン誘導体を用いるのが好ましい。

【0078】この場合の混合比は、それぞれのキャリア

移動度とキャリア濃度によるが、一般的には、ホール注入輸送性化合物の化合物 電子注入輸送機能を有する化合物の重量比が、 $1/99 \sim 99/1$ 、さらに好ましくは $10/90 \sim 90/10$ 、特に好ましくは $20/80 \sim 80/20$ 程度となるようにすることが好ましい。

【0079】また、混合層の厚さは、分子層一層に相当する厚み以上で、有機化合物層の膜厚未満とすることが好ましい。具体的には $1 \sim 85 \text{ nm}$ とすることが好ましく、さらには $5 \sim 60 \text{ nm}$ 、特に $5 \sim 50 \text{ nm}$ とすることが好ましい。

【0080】また、混合層の形成方法としては、異なる蒸着源より蒸発させる共蒸着が好ましいが、蒸気圧(蒸発温度)が同程度あるいは非常に近い場合には、予め同じ蒸着ボード内で混合させておき、蒸着することでもできる。混合層は化合物同士が均一に混合している方が好ましいが、場合によっては、化合物が島状に存在するものであってもよい。発光層は、一般的には、有機蛍光物質を蒸着するか、あるいは、樹脂バインダー中に分散させてコーティングすることにより、発光層を所定の厚さに形成する。

【0081】また、ホール注入輸送層には、例えば、特開昭63-295695号公報、特開平2-191691号公報、特開平3-792号公報、特開平5-234681号公報、特開平5-239455号公報、特開平5-299174号公報、特開平7-126225号公報、特開平7-126226号公報、特開平8-100172号公報、EP0650955A1等に記載されている各種有機化合物を用いることができる。例えば、テトラアリールベンジジン化合物(トリアリールジアミンないしトリフェニルジアミン：TPD)、芳香族三級アミン、ヒドラゾン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、アミノ基を有するオキサジアゾール誘導体、ポリチオフェン等である。これらの化合物は、1種のみを用いても、2種以上を併用してもよい。2種以上を併用するときは、別層にして積層したり、混合したりすればよい。

【0082】ホール注入輸送層をホール注入層とホール輸送層とに分けて設ける場合は、ホール注入輸送層用の化合物のなかから好ましい組合せを選択して用いることができる。このとき、ホール注入電極(ITO等)側からイオン化ポテンシャルの小さい化合物の順に積層することが好ましい。また、ホール注入電極表面には薄膜性の良好な化合物を用いることが好ましい。このような積層順については、ホール注入輸送層を2層以上設けるときも同様である。このような積層順とすることによって、駆動電圧が低下し、電流リークの発生やダークスポットの発生・成長を防ぐことができる。また、素子化する場合、蒸着を用いているので $1 \sim 10 \text{ nm}$ 程度の薄い膜も均一かつピンホールフリーとすることができ、ホール注入層にイオン化ポテンシャルが小さく、可視部

に吸収をもつような化合物を用いても、発光色の色調変化や再吸収による効率の低下を防ぐことができる。ホール注入輸送層は、発光層等と同様に上記の化合物を蒸着することにより形成することができる。

【0083】また、必要に応じて設けられる電子注入輸送層には、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム( $\text{Alq}_3$ )等の8-キノリノールまたはその誘導体を配位子とする有機金属錯体などのキノリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ヘリレン誘導体、ビリジン誘導体、ピリミジン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレン誘導体等を用いることができる。電子注入輸送層は発光層を兼ねたものであってもよく、このような場合はトリス(8-キノリノラト)アルミニウム等を使用することが好ましい。電子注入輸送層の形成は、発光層と同様に、蒸着等によればよい。

【0084】電子注入輸送層を電子注入層と電子輸送層とに分けて積層する場合には、電子注入輸送層用の化合物の中から好ましい組み合わせを選択して用いることができる。このとき、電子注入電極側から電子親和力の値の大きい化合物の順に積層することが好ましい。このような積層順については、電子注入輸送層を2層以上設けるときも同様である。

【0085】ホール注入輸送層、発光層および電子注入輸送層の形成には、均質な薄膜が形成できることから、真空蒸着法を用いることが好ましい。真空蒸着法を用いた場合、アモルファス状態または結晶粒径が $0.1 \mu\text{m}$ 以下の均質な薄膜が得られる。結晶粒径が $0.1 \mu\text{m}$ を超えていると、不均一な発光となり、素子の駆動電圧を高くしなければならなくなり、ホールの注入効率も著しく低下する。

【0086】真空蒸着の条件は特に限定されないが、 $10^{-4} \text{ Pa}$ 以下の真空度とし、蒸着速度は $0.01 \sim 1 \text{ nm/sec}$ 程度とすることが好ましい。また、真空中で連続して各層を形成することが好ましい。真空中で連続して形成すれば、各層の界面に不純物が吸着することを防げるため、高特性が得られる。また、素子の駆動電圧を低くしたり、ダークスポットの発生・成長を抑制したりすることができる。

【0087】これら各層の形成に真空蒸着法を用いる場合において、1層に複数の化合物を含有させる場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して共蒸着することが好ましい。

【0088】本発明では、各発光単位は内部で直列に接続される。このため、各発光単位の発光を電氣的に調整することは困難である。通常、得られる発光色は白色または各発光単位の発光輝度を調製することにより複合された単一の発光色となる。従って、フルカラーやその一部において任意の発光色を得ようとする場合、カラーフィルターを用いて発光色を調整するとよい。

【0089】この場合、基板に色フィルター膜や蛍光性物質を含む色変換膜、あるいは誘電体反射膜を用いて発光色をコントロールしてもよい。

【0090】色フィルター膜には、液晶ディスプレイ等で用いられているカラーフィルターを用いればよいが、有機EL素子の発光する光に合わせてカラーフィルターの特性を調整し、取り出し効率・色純度を最適化すればよい。

【0091】また、EL素子材料や蛍光変換層が光吸収するような短波長の外光をカットできるカラーフィルターを用いれば、素子の耐光性・表示のコントラストも向上する。

【0092】また、誘電体多層膜のような光学薄膜を用いてカラーフィルターの代わりにしてもよい。

【0093】蛍光変換フィルター膜は、EL発光の光を吸収し、蛍光変換膜中の蛍光体から光を放出させることで、発光色の色変換を行うものであるが、組成としては、バインダー、蛍光材料、光吸収材料の三つから形成される。

【0094】蛍光材料は、基本的には蛍光量子収率が高いものを用いれば良く、EL発光波長域に吸収が強いことが望ましい。実際には、レーザー色素などが適しており、ローダミン系化合物・ペリレン系化合物・シアニン系化合物・フクロシアニン系化合物（サブフクロシアニン等も含む）ナフトロイミド系化合物・縮合環炭化水素系化合物・縮合複素環系化合物・スチリル系化合物・クマリン系化合物等を用いればよい。

【0095】バインダーは、基本的に蛍光を消光しないような材料を選べば良く、フォトリソグラフィー・印刷等で微細なパターンニングが出来るようなものが好ましい。また、基板上にホール注入電極と接する状態で形成される場合、ITO、IZOの成膜時にダメージを受けないような材料が好ましい。

【0096】光吸収材料は、蛍光材料の光吸収が足りない場合に用いるが、必要のない場合は用いなくてもよい。また、光吸収材料は、蛍光性材料の蛍光を消光しないような材料を選べばよい。

【0097】さらに、素子の有機層や電極の酸化を防ぐために、素子上に封止層を形成することが好ましい。封止層は、湿気の侵入を防ぐために、接着性樹脂層を用いて、封止板を接着し密封する。封止ガスは、Ar、He、N<sub>2</sub>等の不活性ガス等が好ましい。また、この封止ガスの水分含有量は、100ppm以下、より好ましくは10ppm以下、特には1ppm以下であることが好ましい。この水分含有量に下限値は特にはないが、通常0.1ppm程度である。

【0098】封止板の材料としては、好ましくは平板状であって、ガラスや石英、樹脂等の透明ないし半透明材料が挙げられるが、特にガラスが好ましい。このようなガラス材として、コストの面からアルカリガラスが好ま

しいが、その他、ソーダ石灰ガラス、鉛アルカリガラス、ホウケイ酸ガラス、アルミノケイ酸ガラス、シリカガラス等のガラス組成のものも好ましい。特に、ソーダガラスで、表面処理の無いガラス材が安価に使用でき、好ましい。封止板としては、ガラス板以外にも、金属板、プラスチック板等を用いることもできる。

【0099】封止板は、スペーサーを用いて高さを調整し、所望の高さに保持してもよい。スペーサーの材料としては、樹脂ビーズ、シリカビーズ、ガラスビーズ、ガラスファイバー等が挙げられ、特にガラスビーズ等が好ましい。スペーサーは、通常、粒径の揃った粒状物であるが、その形状は特に限定されるものではなく、スペーサーとしての機能に支障のないものであれば種々の形状であってもよい。その大きさとしては、円換算の直径が1~20 $\mu$ m、より好ましくは1~10 $\mu$ m、特に2~8 $\mu$ mが好ましい。このような直径のものは、粒長100 $\mu$ m以下程度であることが好ましく、その下限は特に規制されるものではないが、通常直径と同程度以上である。

【0100】なお、封止板に凹部を形成した場合には、スペーサーは使用しても、使用しなくてもよい。使用する場合の好ましい大きさとしては、前記範囲でよいが、特に2~8 $\mu$ mの範囲が好ましい。

【0101】スペーサーは、予め封止用接着剤中に混入されていても、接着時に混入してもよい。封止用接着剤中におけるスペーサーの含有量は、好ましくは0.01~30wt%、より好ましくは0.1~5wt%である。

【0102】接着剤としては、安定した接着強度が保て、気密性が良好なものであれば特に限定されるものではないが、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂接着剤を用いることが好ましい。

【0103】基板材料としては特に限定するものではなく、積層する有機EL構造体の電極の材質等により適宜決めることができ、例えば、Al等の金属材料や、ガラス、石英や樹脂等の透明ないし半透明材料、あるいは不透明であってもよく、この場合はガラス等のほか、アルミナ等のセラミックス、ステンレス等の金属シートに表面酸化などの絶縁処理を施したもの、フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂、ポリカーボネート等の熱可塑性樹脂などを用いることができる。本発明の有機EL表示装置は、通常、パルス駆動、直流駆動され、交流駆動とすることもできる。駆動電圧は、通常、2~30V程度である。

【0104】

【実施例】次に、図を参照しつつ本発明の好ましい実施例について説明する。

＜実施例1＞ 先ず、図4、図5に示すように第1の電極2としてITO（錫ドーパ酸化インジウム）をスパッタ法で100nm成膜した。ここで図4は平面図、図5は図4のA-A'断面矢視図である。ITOはストライプパ

ターンとなるようにフォトリソ法でハターニングした。エッチングは $\text{HCl}:\text{HNO}_3:\text{H}_2\text{O}=6:1:19$ の混合比のエッチング液で行った。レジストを剥離すると図4に示すようなパターンが形成された。

【0105】次いで、図6、図7に示すように、常圧CVD法で $\text{SiO}_2$ の絶縁層6を300nm成膜した。ここで図6は平面図、図7は図6のA-A'断面矢視図である。次いで、スパッタ法により電極構造の基部7aとしてAlを1 $\mu\text{m}$ の厚さに成膜した。さらに続けてオーバーハング部7bとして、やはりスパッタ法でCrを200nmの厚さに成膜した。

【0106】さらに、図8～図10に示すように、オーバーハング部7b、基部7a、絶縁層6をパターンニングした。ここで図8は平面図、図9は図8のA-A'断面矢視図、図10は図8のB-B'断面矢視図である。すなわち、フォトリソ法で、電極構造のレジストパターンを形成し、硝酸セリウムアンモニウム水溶液でCrをエッチングし、引き続きAlをリン酸、硝酸、酢酸混合のエッチング液でエッチングした。このとき、充分にAlをオーバーエッチングすることで、Alの基部に対するCrのオーバーハングが1～2 $\mu\text{m}$ 程度になった。

【0107】さらに、図11～図13に示すように、素子分離構造として、素子分離構造体8を形成した。ここで図11は平面図、図12は図11のA-A'断面矢視図、図13は図11のB-B'断面矢視図である。すなわち、ポリイミドを2 $\mu\text{m}$ の厚さに塗布し、続けてオーバーハング部となるポジレジスト層を3 $\mu\text{m}$ の厚さに塗布し、露光し、現像して素子分離構造体を得た。

【0108】発光層を含む有機層3aを蒸着法にて成膜した。まず、ホール注入層及びホール輸送層として、N,N'-ビス(m-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(N,N'-bis(m-methyl phenyl)-N,N'-diphenyl-1,1'-biphenyl-4,4'-diamine以下TPDと略す)を、発光層兼電子輸送層としてトリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(以下Alq<sub>3</sub>と略す)を基板を回転させ、成膜した。その際に、Alq<sub>3</sub>中にルブレンを5wt%の濃度でドーピングした。さらに、銅フタロシアニンを引き続き成膜した。膜厚はそれぞれ、50nm、50nm、50nmとした。

【0109】次いで、中間電極4として、ITO(鉛ドープ酸化インジウム)をスパッタ法で10nm成膜した。

【0110】さらに、発光層を含む有機層3bを蒸着法にて成膜した。まず、ホール注入層として、ポリ(チオフェン-2,5-ジイル)を10nm、ホール輸送層兼発光層として、4,4'-ビス(1,1,2-トリフェニル)エチニル-ビフェニルを50nm、電子輸送層としてAlq<sub>3</sub>を10nm、それぞれ基板を回転させ、成膜した。

【0111】その後、真空を破らずに連続して第2の電

極5としてMg-Ag(Ag:10wt%)合金をスパッタ法にて成膜した。膜厚は200nmにした。第2の電極は圧力10Paにて成膜し、成膜された第2の電極が充分に基部7bに到達するようにした。こうすることで、第2の電極は電極構造体と電気的に接続された。

【0112】得られた構成素子は、図1に示すように、中間電極4であるITO薄膜が電気的に浮遊した状態となっていた。また、各電極構造7で挟まれた部分の構成素子は、それぞれ独立してマトリクス構造を形成していることが確認された。この構成素子に第1の電極であるITOと電極構造体の基部7bとを介して、所定の電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で駆動したところ、基板側から各構成素子の発光を混合した発光色である、概ね白色の発光が観察された。

【0113】＜実施例2＞実施例1において、図14に示すように、ガラス基板上に溝構造11を形成するための下地層9として常圧CVD法で $\text{SiO}_2$ を0.9 $\mu\text{m}$ 成膜した。なお、図14は、図8の断面B-B'矢視図である。次いで、フォトリソグラフィーでライン幅145 $\mu\text{m}$ 、ギャップ幅3 $\mu\text{m}$ のストライプ状のレジストパターンを設け、 $\text{SiO}_2$ をRIE(Reactive Ion Etching)法で約0.9 $\mu\text{m}$ エッチングした。エッチング条件はRFパワー2W/cm<sup>2</sup>、 $\text{CF}_4=80\text{sccm}$ 、ガス圧100mTorr(13.3Pa)、で行った。さらに、レジストもエッチングされやすい条件(RFパワー2W/cm<sup>2</sup>、 $\text{CF}_4/\text{O}_2=70/30\text{sccm}$ 、ガス圧100mTorr(13.3Pa))でエッチングを行った。溝の深さは、後に成膜される発光層を含む有機層3a、3bと第2の電極層5の膜厚の合計の3倍程度とした。なお、溝の開口部分をテーパ状に形成すると第1の電極の段切れや、電流集中を防止することができる。

【0114】次に、第1の電極2としてITO(鉛ドープ酸化インジウム)をスパッタ法で100nm成膜した。一般的にスパッタ法では段差被覆性の良い条件で成膜することが可能である。スパッタ成膜時のガス圧を0.3Pa、スパッタターゲットと基板の間隔を120mmとすることで、溝構造11の中にもITOを成膜することができた。ITOは $\text{SiO}_2$ のストライプパターンと概ね直交するようにフォトリソ法でパターンニングした。エッチングは $\text{HCl}:\text{HNO}_3:\text{H}_2\text{O}=6:1:19$ の混合比のエッチング液で行った。レジストを剥離するとパターンが形成されていた。

【0115】次いで、常圧CVD法で $\text{SiO}_2$ の絶縁層6を0.3 $\mu\text{m}$ 成膜した。RFパワー2W/cm<sup>2</sup>、 $\text{CF}_4/\text{O}_2=70/30\text{sccm}$ 、ガス圧100mTorr(13.3Pa)、RIE法にてエッチングを行い、レジストを剥離し、図14示すような絶縁層を得た。

【0116】その他は実施例1と同様にして有機層3a、3b、および中間電極4を形成し、第2の電極として、Mg-Ag合金(重量比10:1)を蒸着した。膜

厚は200nmにした。第2の電極の成膜は溝部分を完全に覆わないように基板を回転させずに溝の延びる方向と概ね直交する方向から斜方蒸着した。第2の電極6は、溝構造11を挟んでストライプ状に、分離されて形成された。

【0117】得られた有機EL表示装置を実施例1と同様に評価したところ、実施例1とはほぼ同様な結果が得られた。

【0118】＜実施例3＞実施例1において、図15、図16に示すように、電極構造体7を形成した後、ポジレジストを2 $\mu$ m塗布し、乾燥した。ここで、図15は図8のA-A'断面矢視図、図16は図8のB-B'断面矢視図である。さらに、図15、16に示すように、基板面に垂直な方向21と、電極構造体7が延びる方向と概ね直交する方向22から露光した。次いで、これを現像すると図17、図18に示すように、電極構造体7の基部7bには、未露光部分にのみレジスト材12からなる絶縁膜が形成された。

【0119】その他は実施例1と同様にして有機層3a、3b、および中間電極4を形成し、第2の電極として、Mg-Ag合金（重量比10:1）を蒸着した。膜厚は200nmにした。第2の電極の成膜は溝部分を完全に覆わないように基板を回転させずに電極構造体7の延びる方向と概ね直交する方向であって、一方の電極構造体7の陰の部分にも成膜されるよう斜方蒸着した。第2の電極6は、電極構造の絶縁膜により分離されて形成された。

【0120】得られた有機EL表示装置を実施例1と同様に評価したところ、実施例1とはほぼ同様な結果が得られた。

【0121】＜実施例4＞実施例1において、図19、図20に示すように、電極構造体7を形成した後、絶縁膜13としてSOG (spin-on-glass) 膜を50nm成膜した。ここで、図19は図8のA-A'断面矢視図、図20は図8のB-B'断面矢視図である。次いで、図21、図22に示すように、ポジレジストを2 $\mu$ m塗布し、乾燥した。ここで、図21は図8のA-A'断面矢視図、図22は図8のB-B'断面矢視図である。さらに、図21、22に示すように、基板上にフォトマスク26を配置し、基板面に垂直な方からマスク露光25した。さらに、これを現像し、SiO<sub>2</sub>をエッチング処理した。SiO<sub>2</sub>のエッチングは市販のフッ酸水溶液を純水で1/20に希釈した水溶液で10秒間処理することにより行った。

【0122】エッチング処理後、レジスト材を除去すると、図23～25に示すように、露光部分にのみSiO<sub>2</sub>からなる絶縁膜13が形成された。ここで、図23は平面図、図24は図23のA-A'断面矢視図、図25は図23のB-B'断面矢視図である。

【0123】その他は実施例1と同様にして有機EL表

示装置を得た。得られた有機EL表示装置を実施例1と同様に評価したところ、実施例1とはほぼ同様な結果が得られた。

【0124】以上の結果から明らかなように、本発明により比較的簡単な工程で、多層構造（複数発光層を有す）の有機EL表示装置を得ることができる。

【0125】

【発明の効果】以上のように本発明によれば、より高い自由度で製造でき、しかも広い発光波長領域を得ることができ、カラーディスプレイ等の複雑な積層構成とする場合でも、配線数が少なく、製造工程が簡単になり、しかも高輝度が得られる有機EL表示装置およびその製造方法を実現することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機EL表示装置の基本構成を示した概略断面図である。

【図2】従来の有機EL表示装置の各構成単位の接続状態を示した回路図である。

【図3】本発明の有機EL表示装置の各構成単位の接続状態を示した回路図である。

【図4】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した平面図で、第1の電極形成後の状態を示した図である。

【図5】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、図4のA-A'断面矢視図である。

【図6】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した平面図で、電極構造の基部とオーバハング部に相当する層を形成した状態を示した図である。

【図7】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、図6のA-A'断面矢視図である。

【図8】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した平面図で、電極構造の基部とオーバハング部をパターニングし、かつ絶縁層もパターニングした状態を示した図である。

【図9】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、図8のA-A'断面矢視図である。

【図10】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、図8のB-B'断面矢視図である。

【図11】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した平面図で、電極構造形成後、素子分離構造体を形成した状態を示した図である。

【図12】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、図11のA-A'断面矢視図である。

【図13】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、図11のB-B'断面矢視図である。

【図14】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した断面図で、素子分離構造としての溝構造

を形成し、電極構造を形成した状態を示した図である。

【図15】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、電極構造形成後、フォトリソスト層を形成した状態を示した、図8のA-A'断面矢視図である。

【図16】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、電極構造形成後、フォトリソスト層を形成した状態を示した、図8のB-B'断面矢視図である。

【図17】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、フォトリソスト層を形成した後、これを現像した状態を示した状態を示した、図8のA-A'断面矢視図である。

【図18】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、フォトリソスト層を形成した後、これを現像した状態を示した状態を示した、図8のB-B'断面矢視図である。

【図19】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、電極構造形成後、絶縁膜を形成した状態を示した、図8のA-A'断面矢視図である。

【図20】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、電極構造形成後、絶縁膜を形成した状態を示した、図8のB-B'断面矢視図である。

【図21】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、絶縁膜を形成し、さらにフォトレ

ジスト層を形成して露光した状態を示した、図8のA-A'断面矢視図である。

【図22】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、絶縁膜を形成し、さらにフォトリソスト層を形成して露光した状態を示した、図8のB-B'断面矢視図である。

【図23】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した平面図で、露光後現像した状態を示した図である。

【図24】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、図23のA-A'断面矢視図である。

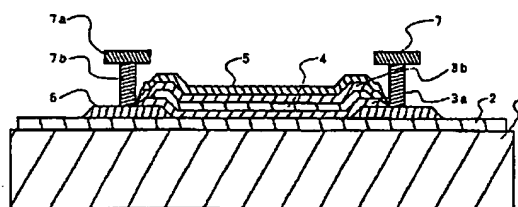
【図25】本発明の実施例である有機EL表示装置の製造工程を示した図で、図23のB-B'断面矢視図である。

【図26】従来の有機EL表示装置の一例を示した断面図である。

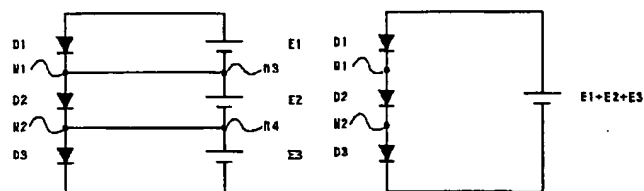
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 第1の電極
- 3a, 3b 有機層
- 4 中間電極
- 5 第2の電極
- 6 絶縁層
- 7 電極構造体

【図1】

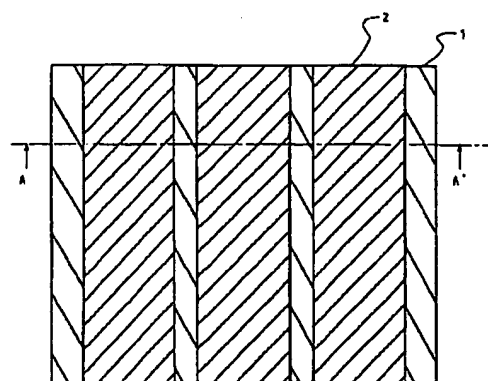


【図2】



【図3】

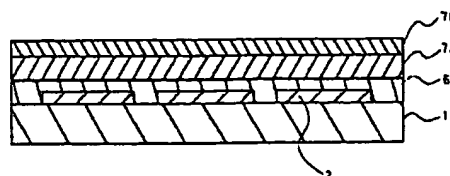
【図4】



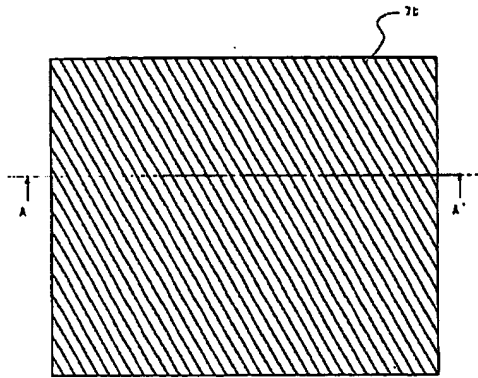
【図5】



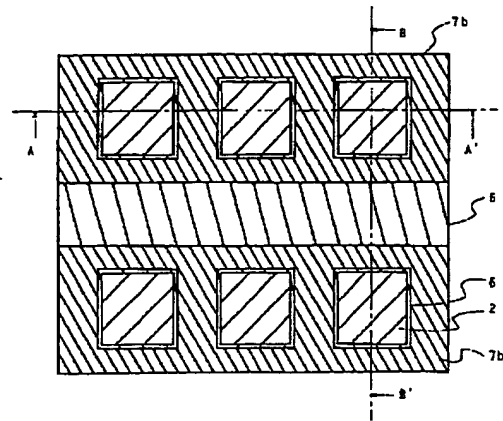
【図7】



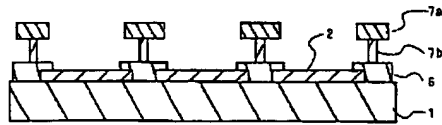
【図6】



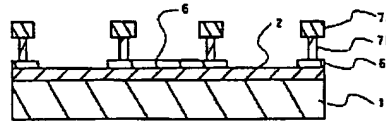
【図8】



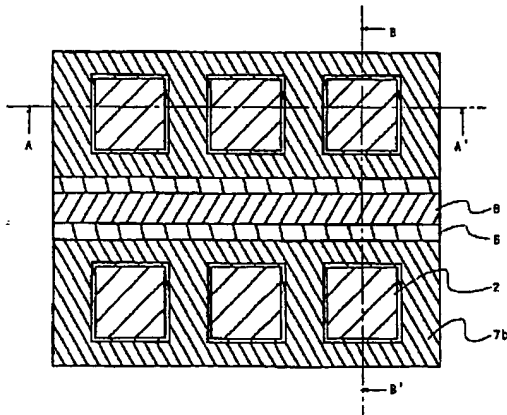
【図9】



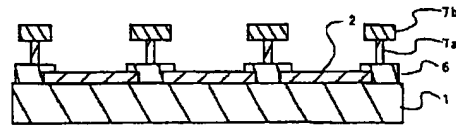
【図10】



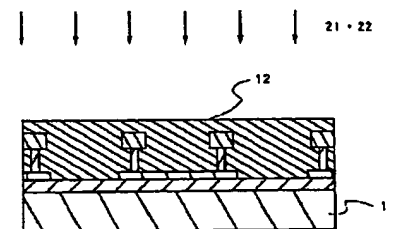
【図11】



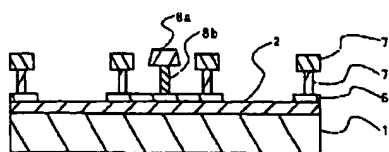
【図12】



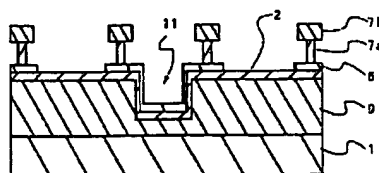
【図16】



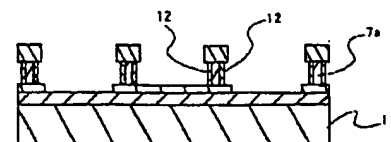
【図13】



【図14】

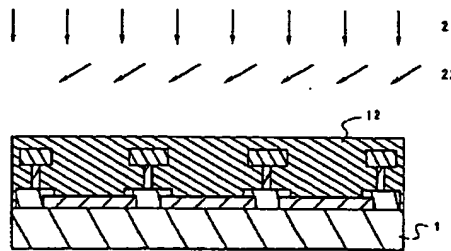


【図18】

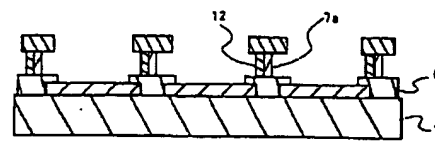




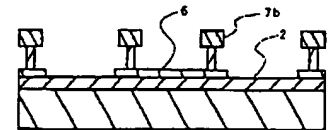
【図15】



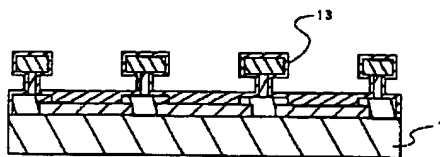
【図17】



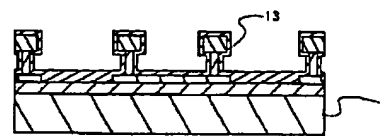
【図25】



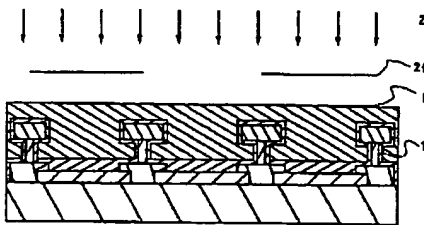
【図19】



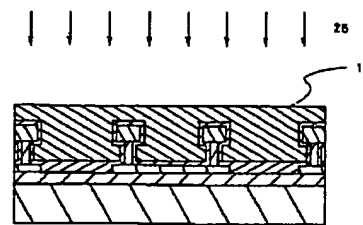
【図20】



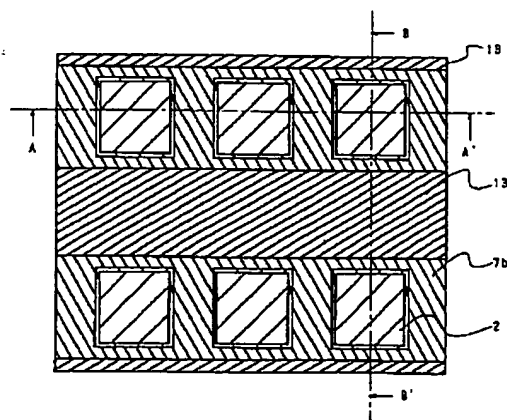
【図21】



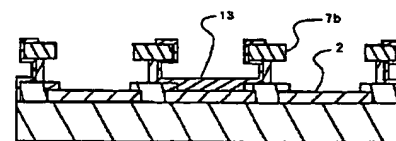
【図22】



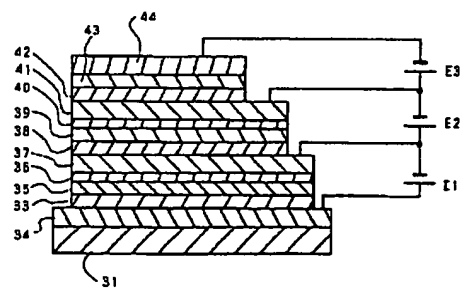
【図23】



【図24】



【図26】



## 27p-YL-2

## ITOを陰極として用いたトップエミッション有機EL素子

Top Emitting Organic EL Devices Having ITO Cathode

山形大院・理工学研究科 ○深瀬 章夫、城戸 淳二

Yamagata Univ. ○Akio Fukase, Junji Kido

kido@yz.yamagata-u.ac.jp

従来 有機EL素子をアクティブマトリクス駆動ディスプレイとして応用する場合、基板とは反対側の素子上部から光を取り出す「トップエミッション構造」を実現できれば基板上の駆動回路に光が遮られることがなく、開口率の増加が見込める。<sup>1)</sup> そこで本研究では透明電極であるIndium Tin Oxide (ITO)を素子上部の陰極として使用し、アルカリ金属をドーブした有機層を陰極界面層として用いたトップエミッション有機EL素子について検討を行った。

実験 ガラス基板上に陽極としてAl、陰極界面層としてITO、陰極界面層として以前当研究室で検討したバソクプロリン(BCP)とCsの共蒸着膜(モル比1:1)をそれぞれ用いた。<sup>2)</sup> ITOは対向ターゲット方式のスパッタ装置を用い、出力はDC 150 W RF 100 W、導入ガス流量:Ar:O<sub>2</sub>=50:1、圧力:3.8×10<sup>-2</sup> Pa、成膜速度:約2 Å/sという条件で成膜した。

素子構造は Glass/Al(70nm)/ITO(30nm)/α-NPD(60nm)/Alq<sub>3</sub>(80nm)/BCP:Cs(30nm)/ITO(100nm)とした。

結果 作製した素子の電圧-輝度特性をFig.1に示す。この素子からは15 Vで最高輝度2600 cd/m<sup>2</sup>、電流効率2.4 cd/A、外部量子効率0.95%という高効率のトップエミッションが得られた。これはITO陰極界面にBCP:Cs共蒸着層を用いることで電子の注入が促進されたためと考えられる。詳細については当日報告する。

1) T. Sanoaka, et al., SID '01 Digest, p.384 (2001)

2) 岸上、城戸、椿、近藤: 第47回応用物理学関係連合講演会 31a-H-12 (2000)

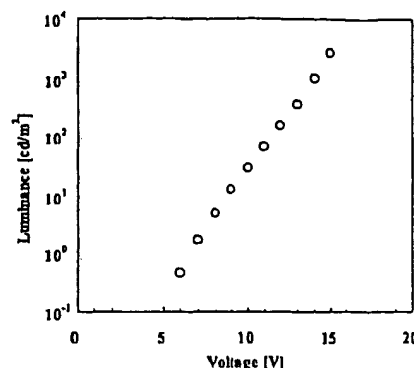


Fig.1 Luminance-voltage characteristics.

## 27p-YL-3

## 電荷発生層を有する高量子効率有機EL素子

High Quantum Efficiency Organic EL Devices Having Charge Generation Layer

山形大院<sup>1)</sup>、アイメス<sup>2)</sup> ○城戸淳二<sup>1)</sup>、遠藤潤<sup>1)</sup>、仲田壮志<sup>1)</sup>、森浩一<sup>2)</sup>、横井啓<sup>2)</sup>、松本敏男<sup>2)</sup>Yamagata Univ.<sup>1)</sup>, IMES<sup>2)</sup> ○J. Kido<sup>1)</sup>, J. Endo<sup>1)</sup>, T. Nakada<sup>1)</sup>, K. Mori<sup>2)</sup>, A. Yokoi<sup>2)</sup>, T. Matsumoto<sup>2)</sup>

Kido@yz.yamagata-u.ac.jp

【はじめに】有機EL素子では、対向する陰極と陽極から電子とホールを注入し、それらを発光層中で再結合させることにより有機分子を励起する。現在、積層構造を採用することにより再結合効率はほぼ100%に達し、リン光材料を発光中心に使用する場合、素子の内部量子効率(QE)、すなわち電子から光子への変換効率は理論的上限の100%に達している。本研究では、電荷発生層(CGL)を用いることにより原理的に100%以上のQEを達成できるマルチフォトンエミッション(MPE)素子を開発することに成功したので報告する。

【実験】電荷発生層(CGL)を用いる典型的な素子構造は、ガラス/ITO/ホール輸送層/電子輸送性発光層/電子注入層/CGL/ホール輸送層/電子輸送性発光層/電子注入層/Al陰極であり、ITO上の有機膜、CGL、陰極まで真空中にて成膜した(図1)。ホール輸送層にはα-NPD、電子輸送性発光層にはクマリン誘導体をドーブしたAlq、電子注入層には金属ドーブ有機層などを用いた。

【結果】CGLとしてITOを用いた素子では、電流効率34 cd/Aが得られ、従来の素子(17 cd/A)と比較して量子効率が二倍に向上した。これは、電圧印加によりCGLに用いたITOからAl陰極側にホールが、ITO陽極側に電子が注入され、それぞれ電極から注入された電子あるいはホールと再結合したためと考えられる。したがって、複数のCGLを用いることにより、従来の素子に比べてQEは(CGL数+1)倍となり、マルチフォトンエミッションが可能となり、基本的にQEの理論的上限はなくなり、極めて低い電流での高輝度駆動が可能になると考えられる。

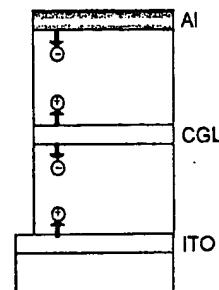


Fig. 1 Structure of MPE Organic EL Device with Charge Generation Layer.

## 27p-YL-4

## RGB 燐光材料を分散した高分子EL素子

Polymer Light Emitting Diodes doped with RGB Phosphorescent Materials

NHK 技研 ○鈴木 充典、田中 功、時任 静士

NHK Science &amp; Technical Research Labs., OM. Suzuki, I. Tanaka, S. Tokito

Email: suzuki.m-da@nhk.or.jp

【はじめに】我々はこれまで Ir(ppy)<sub>3</sub>(緑)、Ir(btp)<sub>2</sub>(acac)(赤)、FIrpic(青)の3色の燐光材料をホール輸送性高分子PVKに分散した高分子EL素子を作製し、高分子系で燐光によるRGBおよび白色発光を実現した<sup>1)</sup>。しかし緑色に関しては高効率な特性が得られたものの、青色、赤色に関しては満足できる特性ではなかった。そこで今回、発光効率の低かった青色発光素子を中心に発光特性の改善を行ったので報告する。

【実験と結果】素子構造は、ITO/PEDOT/[PVK+電子輸送材料+燐光材料]/Ca/Alとし、スピコート法で作製した。燐光材料の含量は8wt%とした。FIrpicを燐光材料として電子輸送材料の検討を行ったところ、従来のPBDの代わりにOXD-7<sup>2)</sup>を用いることで、1桁以上の特性改善が見られた。更に陰極にLiF/Ca/Al構造を導入することで発光効率が更に向上し、輝度100cd/m<sup>2</sup>における外部量子効率は7.8%に達した。また、この素子構造で燐光材料にIr(btp)<sub>2</sub>(acac)を用いた結果、最大で5.1%の外部量子効率を示す赤色発光素子が得られた。白色EL素子に関しては、FIrpicとIr(btp)<sub>2</sub>(acac)を7.8:0.2の比率で分散することで良好な白色発光(CIE<sub>x</sub>=0.30, CIE<sub>y</sub>=0.35)が得られた。この素子の発光効率は輝度100cd/m<sup>2</sup>において3.2lm/W、外部量子効率は6%に達し、表1に示すようにRGB及び白色すべてにおいて発光の限界とされる外部量子効率5%を超えた。以上、燐光材料をPVKに分散させた高分子EL素子において、電子輸送材料及び電極構造の最適化により高効率化を達成できた。

1) 鈴木、仙, 第62回秋季応用物理学学会学術講演会, 11p-V-4, (2001)

2) 浜田、仙, polymer preprints, Japan, Vol.40, No.10(1991)3603

表1. 燐光高分子EL素子の発光特性

発光色	CIE <sub>x</sub>	CIE <sub>y</sub>	外部量子効率 <sup>*</sup> (%) @100cd/m <sup>2</sup>	パワ変換効率 <sup>*</sup> (lm/W) @100cd/m <sup>2</sup>
Blue	0.16	0.36	7.82 (8.01)	6.51 (8.76)
Red	0.69	0.31	3.52 (5.09)	0.44 (1.40)
Green	0.31	0.61	8.24 (8.24)	9.61 (11.4)
White	0.3	0.35	6.2 (6.4)	3.2 (4.5)

\*がって内は最大値

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**